

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-297383

(43)Date of publication of application : 17.10.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/02
// H01M 8/10

(21)Application number : 2002-103797

(71)Applicant : MITSUBISHI PLASTICS IND LTD

(22)Date of filing : 05.04.2002

(72)Inventor : MIYAGAWA MICHINARI

(54) SEPARATOR FOR FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a separator for a fuel cell, particularly a solid polyelectrolyte fuel cell satisfying both current collecting performance and formability, and strength and corrosion resistance.

SOLUTION: The separator for the fuel cell is provided with a resin conductive layer 12 by mixing resin with conductive filler on at least one face of a metal substrate 11. It is characterized by that the resin conductive layer has at least a first resin layer 13 with volume resistivity of $\leq 1.0 \Omega\text{cm}$, and a second resin layer 14 forming a surface of the resin conductive layer and having volume resistivity smaller than the first resin layer.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

30.03.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2003-297383
(P2003-297383A)

(43) 公開日 平成15年10月17日 (2003. 10. 17)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	データベース (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 5 H 0 2 6
// H 0 1 M 8/10		8/10	

審査請求 未請求 請求項の数15 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願2002-103797 (P2002-103797)

(22) 出願日 平成14年4月5日 (2002. 4. 5)

(71) 出願人 000006172

三菱樹脂株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

(72) 発明者 宮川 倫成

滋賀県長浜市三ツ矢町5番8号 三菱樹脂
株式会社長浜工場内

(74) 代理人 100088328

弁理士 金田 暢之 (外2名)

Fターム (参考) 5H026 AA06 BB04 CX02 CX08 EE02

EE05 EE08 EE11 EE18 EE19

HH03 HH05 HH06

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

(57) 【要約】

【課題】 本発明は、集電性能と成形性、強度および耐食性の両方を満足する燃料電池、特に固体高分子電解質型燃料電池用のセパレータを提供することを目的とする。

【解決手段】 金属基板11の少なくとも片面に、樹脂と導電性充填剤を混合した樹脂導電層12を設けた燃料電池用セパレータであって、前記樹脂導電層が、体積抵抗率が1.0Ω・cm以下の第1の樹脂層13と、樹脂導電層の表面を形成し且つ体積抵抗率が前記第1の樹脂層よりも小さい第2の樹脂層14とを少なくとも有することを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属基板の少なくとも片面に、樹脂と導電性充填剤を混合した樹脂導電層を設けた燃料電池用セパレータであって、

前記樹脂導電層が、体積抵抗率が $1.0\Omega\cdot\text{cm}$ 以下の第1の樹脂層と、樹脂導電層の表面を形成し且つ体積抵抗率が前記第1の樹脂層よりも小さい第2の樹脂層とを少なくとも有することを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項2】 前記第2の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率が、前記第1の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率より大きいことを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項3】 前記第2の樹脂層の体積抵抗率が $0.5\Omega\cdot\text{cm}$ 以下であることを特徴とする請求項1または2記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項4】 前記第1の樹脂層は、導電性充填剤を15～40体積%含有し、前記第2の樹脂層は、導電性充填剤を45～90体積%含有することを特徴とする請求項2記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項5】 前記樹脂導電層が、前記金属基板との界面側に、体積抵抗率が前記第1の樹脂層よりも小さい第3の樹脂層をさらに有することを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項6】 前記第3の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率が、前記第1の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率より大きいことを特徴とする請求項5記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項7】 前記第3の樹脂層の体積抵抗率が $0.5\Omega\cdot\text{cm}$ 以下であることを特徴とする請求項5または6記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項8】 前記第3の樹脂層は、導電性充填剤を45～90体積%含有することを特徴とする請求項6記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項9】 前記金属基板の材料がステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッケルおよび鋼からなる群より選ばれることを特徴とする請求項1～8のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項10】 前記導電性充填剤が、炭素系材料、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物および金属からなる群より選ばれることを特徴とする請求項1～9のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項11】 前記導電性充填剤が、炭化タングステン、カーボンナノチューブおよびカーボンナノファイバーからなる群より選ばれることを特徴とする請求項1～9のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項12】 前記カーボンナノチューブ及び／又はカーボンナノファイバーは、繊維径が $0.001\sim 0.5\mu\text{m}$ であり繊維長が $1\sim 100\mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項11記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項13】 前記樹脂がフッ素樹脂及びフッ素ゴムから選ばれることを特徴とする請求項1～12のいずれかに記載の燃料電池セパレータ。

【請求項14】 前記第1の樹脂層の厚さが $5\sim 300\mu\text{m}$ の範囲、前記第2の樹脂層の厚さが $0.1\sim 20\mu\text{m}$ の範囲であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項15】 前記第1の樹脂層の厚さが $5\sim 300\mu\text{m}$ の範囲、前記第2の樹脂層の厚さが $0.1\sim 20\mu\text{m}$ の範囲、前記第3の樹脂層の厚さが $0.1\sim 20\mu\text{m}$ の範囲であることを特徴とする請求項5～8のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は燃料電池用セパレータに係り、詳しくは単電池を複数積層して構成する燃料電池において隣接する単電池間に設けられ、電極との間で燃料ガス流路及び酸化ガス流路を形成すると共に燃料ガスと酸化ガスとを隔てる燃料電池用セパレータであって、特に成形性、強度、耐食性に優れた燃料電池用セパレータに関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池、特に固体高分子型燃料電池を構成するセパレータは、固体電解質膜を両側から挟持する各電極に接触して配置されて、該電極との間に燃料ガス、酸化剤ガス等の供給ガス流路を形成するため、セパレータの電極に対向する面にはガス流路を形成するための多数の突起部、溝部等が形成される。

【0003】また、燃料電池の単電池の起電力は、1V以下と低く、通常、複数の単電池をセパレータを介して積層して構成される。そのため、セパレータは、電極と接触して電流を導出する役割を果たすため、集電性能に優れたものが要求される。

【0004】従来、一般に燃料電池用セパレータとしては、基材として強度、導電性に優れた緻密カーボングラファイト、またはステンレス鋼（SUS）、チタン、アルミニウム等の金属材料で構成されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかし、緻密カーボングラファイトにて構成されるセパレータでは、電気伝導性が高く、かつ長期間の使用によっても高い集電性能が維持されるが、非常に脆い材料であることからセパレータの表面に多数の突起部や溝部を形成すべく切削加工等の機械加工を施すことは容易ではなく量産が困難であるという問題がある。

【0006】一方、上記金属材料にて構成されるセパレータにおいては、緻密カーボングラファイトに比較して強度、延性に優れていることからガス流路を形成するための多数の突起部、溝部等の形成はプレス加工が可能であって量産も容易であるという利点がある。しかし、比

較的低温で動作する固体高分子型燃料電池であっても、70～90℃の温度における飽和に近い水蒸気にさらされるため、金属材料を用いたセバレータでは、その表面に腐食による酸化膜が生成され易く、その結果、生成された酸化膜と電極との接触抵抗が大きくなり、セバレータの集電性能が低下する問題がある。

【0007】そこで、セバレータの構成材料として加工性に優れた金属材料の表面に、耐食性に優れた金等の貴金属材料をコーティングした材料が検討されている。しかしながら、このような材料は極めて高価なために汎用性に欠けるという問題がある。

【0008】これらの問題を解決するために、本出願人は、金属基板の表面に導電性フィラーを混合した樹脂層を設けたセバレータを開示した(特開2002-15750号公報)。このセバレータでは、電気伝導性が高く、集電性能に優れていると同時に、成形性、強度および耐食性に優れている。

【0009】本発明は、さらに性能を向上させるためになされたものであり、集電性能と成形性、強度および耐食性の両方を満足する燃料電池、特に固体高分子電解質型燃料電池用のセバレータを提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明は、以下の事項に関するものである。

【0011】1. 金属基板の少なくとも片面に、樹脂と導電性充填剤を混合した樹脂導電層を設けた燃料電池用セバレータであって、前記樹脂導電層が、体積抵抗率が $1.0\Omega\cdot\text{cm}$ 以下の第1の樹脂層と、樹脂導電層の表面を形成し且つ体積抵抗率が前記第1の樹脂層よりも小さい第2の樹脂層とを少なくとも有することを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【0012】2. 前記第2の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率が、前記第1の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率より大きいことを特徴とする上記1記載の燃料電池用セバレータ。

【0013】3. 前記第2の樹脂層の体積抵抗率が $0.5\Omega\cdot\text{cm}$ 以下であることを特徴とする上記1または2記載の燃料電池用セバレータ。

【0014】4. 前記第1の樹脂層は、導電性充填剤を15～40体積%含有し、前記第2の樹脂層は、導電性充填剤を45～90体積%含有することを特徴とする上記2記載の燃料電池用セバレータ。

【0015】5. 前記樹脂導電層が、前記金属基板との界面側に、体積抵抗率が前記第1の樹脂層よりも小さい第3の樹脂層をさらに有することを特徴とする上記1～4のいずれかに記載の燃料電池用セバレータ。

【0016】6. 前記第3の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率が、前記第1の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率より大きいことを特徴とする上記5記載の燃

料電池用セバレータ。

【0017】7. 前記第3の樹脂層の体積抵抗率が $0.5\Omega\cdot\text{cm}$ 以下であることを特徴とする上記5または6記載の燃料電池用セバレータ。

【0018】8. 前記第3の樹脂層は、導電性充填剤を45～90体積%含有することを特徴とする上記6記載の燃料電池用セバレータ。

【0019】9. 前記金属基板の材料がステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッケルおよび鋼からなる群より選ばれることを特徴とする上記1～8のいずれかに記載の燃料電池用セバレータ。

【0020】10. 前記導電性充填剤が、炭素系材料、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物および金属からなる群より選ばれることを特徴とする上記1～9のいずれかに記載の燃料電池用セバレータ。

【0021】11. 前記導電性充填剤が、炭化タングステン、カーボンナノチューブおよびカーボンナノファイバーからなる群より選ばれることを特徴とする上記1～9のいずれかに記載の燃料電池用セバレータ。

【0022】12. 前記カーボンナノチューブ及び／又はカーボンナノファイバーは、繊維径が $0.001\sim 0.5\mu\text{m}$ であり繊維長が $1\sim 100\mu\text{m}$ であることを特徴とする上記11記載の燃料電池用セバレータ。

【0023】13. 前記樹脂がフッ素樹脂及びフッ素ゴムから選ばれることを特徴とする上記1～12のいずれかに記載の燃料電池セバレータ。

【0024】14. 前記第1の樹脂層の厚さが $5\sim 300\mu\text{m}$ の範囲、前記第2の樹脂層の厚さが $0.1\sim 20\mu\text{m}$ の範囲であることを特徴とする上記1～4のいずれかに記載の燃料電池用セバレータ。

【0025】15. 前記第1の樹脂層の厚さが $5\sim 300\mu\text{m}$ の範囲、前記第2の樹脂層の厚さが $0.1\sim 20\mu\text{m}$ の範囲、前記第3の樹脂層の厚さが $0.1\sim 20\mu\text{m}$ の範囲であることを特徴とする上記5～8のいずれかに記載の燃料電池用セバレータ。

【0026】

【発明の実施の形態】図1は、多数の単電池を積層した積層型燃料電池のセバレータ付近を拡大した模式図である。単電池1a、単電池1bはそれぞれ、固体高分子電解質膜2a、2b、それを挟持する電極3a、3bを有し、単電池1aおよび単電池1bの間がセバレータ10で隔てられていると同時に、電極3aに接して単電池1a側でガス流路4aを形成し、また電極3bに接して単電池1b側でガス流路4bを形成している。この形態のセバレータ10は、金属基板11の両面に樹脂導電層12を設けたものであり、電極3aおよび電極3bの両方に接していることから、単電池1aと単電池1bを直列に接続している。

【0027】図2に、セバレータの層構造の1例を示す。尚、セバレータは終端の単電池に用いられる場合な

どでは、金属基板の片面にのみ樹脂導電層が設けられる場合もあるので、以下、金属基板の片面の層構造のみを示す。

【0028】図2の形態では、金属基板11の表面に設けられた樹脂導電層12が、第1の樹脂層13と第2の樹脂層14の2層からなる。樹脂導電層の表面層を形成している第2の樹脂層は、第1の樹脂層よりも小さい体積抵抗率を有している。本発明では、表面層を構成する第2の樹脂層が導電性に優れることから、図1に示したように電極3a、3bとの接触面の抵抗を小さくすることができる。一方、金属基板側に設けられた第1の樹脂層は、体積抵抗率が $1.0\Omega\cdot\text{cm}$ 以下であるので、十分な導電性を保ちながらも第2の樹脂層ほどの導電性は要求されない。従って、第1の樹脂層については、例えば樹脂成分を増加させることなどにより、成形性・耐食性、強度および耐食性を重視して層を構成することができる。即ち、本発明では、第1の樹脂と第2の樹脂との間で体積抵抗率を変え、樹脂導電層の機能を第1の樹脂層、第2の樹脂層に分担させることで、集電性能と、プレス加工での成形性、強度および耐食性の両方を満足させることができるのである。

【0029】また、図3に、セパレータの異なる層構造の1例を示す。この例は、第1の樹脂層13と金属基板11の間に、さらに第3の樹脂層15を設けた構造である。第3の樹脂層は、第1の樹脂層よりも小さい体積抵抗率を有しており、金属基板と樹脂導電層の間の接触抵抗を低減できる。即ち、この形態では、第3の樹脂層により金属基板と樹脂導電層の界面の接触抵抗の低減を図り、また第2の樹脂層により電極との接触抵抗の低減を図り、その一方で第1の樹脂層を成形性・耐食性、強度および耐食性を重視した層構成とすることで、集電性能と成形性、強度および耐食性の両方を満足するセパレータを得ることができる。

【0030】第3の樹脂層の体積抵抗率は、第2の樹脂層の体積抵抗率と等しくても、異なってもどちらでも構わない。

【0031】次に、各層の材料を示しながらさらに詳細に説明する。

【0032】本発明のセパレータで使用する金属基板としては、ステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッケル、銅からなる薄板が好適に使用でき、厚みは $0.1\text{mm}\sim 1.5\text{mm}$ の範囲が望ましい。

【0033】金属基板表面には樹脂層との接着性を改良する目的でエッチング層や研磨層などの表面処理層を設けてもよく、表面処理層の厚さは $0.1\sim 30\mu\text{m}$ が望ましい。また、金属基板表面をシランカップリング剤等でプライマー処理してもよい。

【0034】樹脂導電層に混合される樹脂は、耐薬品性からフッ素樹脂またはフッ素ゴムが好ましい。具体的には、PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）、PFA

（テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体）、FEP（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体）、EPE（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体）、ETFE（テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体）、PCTFE（ポリクロトリフルオロエチレン）、ECTFE（クロロトリフルオロエチレン-エチレン共重合体）、PVDF（ポリフッ化ビニリデン）、PVF（ポリビニルフルオライド）、THV（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体）、VDF-HFP（フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体）、TFE-P（フッ化ビニリデン-プロピレン共重合体）、含フッ素シリコン系ゴム、含フッ素ビニルエーテル系ゴム、含フッ素フォスフェゼン系ゴム、および含フッ素熱可塑性エラストマーを挙げることができる。これらのフッ素樹脂またはフッ素ゴムは単独で、または2種以上を混合して使用することができる。

【0035】特に、成形性の点からフッ化ビニリデンを含むPVDF、THV、VDF-HFP及びTFE-Pが好ましい。

【0036】また、導電性充填剤は、導電性が高く、耐腐食性に優れるものが好ましく、例えば、炭素系材料、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物および金属等の導電性材料の粉末または繊維の中から使用環境に合わせて用いることができる。

【0037】炭素系材料としては、粉末状のものととして、黒鉛（人造黒鉛、天然黒鉛）、カーボンブラック、膨張黒鉛が挙げられ、繊維状のものとしてはカーボンナノチューブ、カーボンナノファイバーおよび炭素繊維を挙げることができる。尚、カーボンナノチューブおよびカーボンナノファイバーは、繊維径が $0.001\sim 0.5\mu\text{m}$ 、好ましくは $0.003\sim 0.2\mu\text{m}$ であり、繊維長が $1\sim 100\mu\text{m}$ 、好ましくは $1\sim 30\mu\text{m}$ が導電性の点から好ましい。

【0038】金属炭化物としては、炭化タングステン、炭化ケイ素、炭化タンタル、炭化チタン、炭化ニオブ、炭化モリブデン、炭化バナジウム、炭化クロムおよび炭化ハフニウム等の粉末を挙げることができる。この中でも、炭化タングステン、炭化チタン、炭化ニオブ、炭化クロム等の粉末および繊維が好ましい。

【0039】金属酸化物としては、酸化チタン、酸化ルテニウム、酸化インジウム、酸化スズおよび酸化亜鉛等の粉末を挙げることができる。この中でも、酸化スズ、酸化インジウム等の粉末および繊維が好ましい。

【0040】金属窒化物としては、窒化クロム、窒化アルミニウム、窒化モリブデン、窒化ジルコニウム、窒化タンタル、窒化チタン、窒化ガリウム、窒化ニオブ、窒化バナジウムおよび窒化ホウ素等の粉末および繊維を挙

げることができる。この中でも、窒化クロム、窒化モリブデンが好ましい。

【0041】金属としては、粉末状のものとしてチタン、ニッケル、スズ、銅、アルミニウム、亜鉛、銀、 tantalum およびニオブ等の粉末が挙げられ、繊維としては鉄繊維、銅繊維およびステンレス繊維等を挙げることができる。

【0042】導電性充填剤は1種類だけを用いても、2種類以上を組み合わせ用いてもよい。例えば、カーボンナノチューブおよび／またはカーボンナノファイバーとその他の炭素系材料とを混合して用いることができる。

【0043】以上の導電性充填剤の中でも、特に導電性が高く、70～90℃の温度で飽和に近い水蒸気にさらされても安定で、抵抗の変化の少ないものが好ましく、炭素系材料、金属炭化物および金属窒化物が好ましく、特に炭素系材料および金属炭化物が好ましい。具体的には、特にカーボンナノチューブおよびカーボンナノファイバーのどちらか一方またはその両方の混合物、炭化タングステン、炭化タングステンとカーボンナノチューブおよび／またはカーボンナノファイバーとの組み合わせが好ましい。

【0044】導電性充填剤は、粉末の場合は、通常、重量平均粒径（レーザー散乱による測定）が20μm以下、好ましくは15μm以下、特に好ましくは10μm以下であり、通常0.01μm以上、好ましくは0.05μm以上、特に好ましくは0.1μm以上である。また、繊維状の場合は、カーボンナノチューブおよびカーボンナノファイバーについては前述の通りであり、その他の材料の繊維のときは、繊維径が50μm以下、好ましくは20μm以下であり、通常1μm以上、好ましくは5μm以上であり、繊維長が1～10,000μm、好ましくは5～1,000μmが導電性の点から好ましい。

【0045】本発明の樹脂導電層は、上述の樹脂と導電性充填剤を混合したものであり、その際に、金属基板表面に接する第1の樹脂層の体積抵抗率が、1.0Ω・cm以下（JIS K 7194による）になるように適宜配合すればよく、第2の樹脂層および第3の樹脂層の体積抵抗率に関しては、第1の樹脂層より体積低効率が小さくなるように適宜配合すればよい。第2の樹脂層および第3の樹脂層の体積抵抗率は、好ましくは0.5Ω・cm以下、特に0.1Ω・cm以下である。

【0046】本発明の一態様では、第2の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率が、第1の樹脂層中の導電性充填剤の体積含有率より大きくなるように各層を構成する。具体的には、第1の樹脂層中の導電性充填剤の含有量を15～40体積％（ここで、体積％は、樹脂層全体の体積に対する充填剤の体積割合である。以下、同じ。）とし、第2の樹脂層中の導電性充填剤の含有量を45～90体積％とすることが好ましい。さらに好まし

くは、第1の樹脂層中の含有量は15～35体積％であり、一方第2の樹脂層中の含有量は60～90体積％である。一般に、導電性充填剤の混合比率が15体積％未満では体積抵抗率が1.0Ω・cmを超える場合が多く、また90体積％を越えると成形が困難になり易い。

【0047】また、第3の樹脂層についても、第2の樹脂層に準じて導電性充填剤の種類、量を適宜変更し（第2の樹脂層と同一であってもよい）、適宜決めることができる。

【0048】各樹脂層の厚さに関しては、まず、第1の樹脂層の厚さは、通常5～300μm、好ましくは10～150μmである。第2の樹脂層の厚さは、通常0.1～20μm、好ましくは1～10μmである。

【0049】また、第3の樹脂層を設けるときは、第3の樹脂層の厚さは、通常0.1～20μm、好ましくは1～10μmである。

【0050】樹脂導電層全体の厚さは、薄すぎると、金属基板への耐食効果が少なく、厚すぎるとセパレータが厚くなりスタックされた燃料電池が大きくなるので、導電性および成形性、強度等を考慮して、上記の各樹脂層の通常の範囲で決めることが好ましい。従って、通常は5.1～340μmの範囲であり、好ましくは11～170μm、さらに好ましくは15～150μmの範囲である。

【0051】本発明のセパレータの製造方法は特に限定されないが、例えば、第1の樹脂層、第2の樹脂層、第3の樹脂層を、通常押出成形、ロール成形法等により予めそれぞれシートとして形成しておき、金属基板の片面又は両面に、第3の樹脂層（存在するとき）、第1の樹脂層、第2の樹脂層で積層して熱プレス加工によって一体化する。熱プレス法の条件も通常のプレス条件、加熱温度120℃～300℃、圧力2.9×10⁶Pa～9.8×10⁶Pa（30kgf/cm²～100kgf/cm²）程度にて行なえばよい。

【0052】また、特に第2、第3の樹脂層に関しては、多量の導電性充填剤が含まれて、自己保持性のシートの形成が困難である場合もあるので、そのときは、予め適当な転写基材上にフィルムを形成し、これを熱転写することで積層することができる。転写基材にフィルムを形成する方法としては、例えば樹脂および導電性充填剤を適当な溶媒に溶解した溶液を、転写基材上に塗布し、乾燥する方法が挙げられる。

【0053】このようにして、金属基板に樹脂導電層を設けた積層体を形成した後、プレス加工により突起部や溝部を形成して、所定の形状のセパレータとする方法が生産性等の点から好ましい。

【0054】

【実施例】以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0055】＜実施例1＞フッ素樹脂（「住友スリーエ

ム(株)」製 THV220G) 比重2)23重量部(70体積%)とタングステンカーバード(「(株)アライドマテリアル」製 WC20 比重15.5)77重量部(30体積%)を2軸押出機にて混合した。

【0056】この混合物を押出成形にて厚さ200 μ mのフッ素樹脂シート(第1の樹脂層)を作成した。

【0057】金属基板はSUS304(厚み0.3mm)の表裏面をブラスト研磨法にて0.1 μ mの表裏研磨層を形成したものを使用し、プライマーとしてシランカップリング剤(「GE東芝シリコン(株)」製 TSL8331)3%エタノール溶液をバーコーター(「松尾産業製」#10番)で表面研磨層したSUS304の両面に塗布後、100℃10分乾燥し、導電性フッ素樹脂シート/SUS304/導電性フッ素樹脂シートの順に載置し、温度200℃、10分、圧力3.5 \times 10⁶Pa(36kgf/cm²)にて熱プレス加工して積層一体化し、金属基板の両面に第1の樹脂層を成形した。

【0058】一方、第2の樹脂層形成用として、MEK(メチルエチルケトン)に固形分として10重量%になるように、フッ素樹脂(「住友スリーエム(株)」製 THV220G 比重2)とカーボンナノチューブ(「昭和電工(株)」製 気相法炭素繊維<VGCF> 比重2)体積比30/70で混合し塗料を作製した。

【0059】上記塗料を基材フィルム(ポリエチレンテレフタレート、三菱化学ポリエステル(株)製:厚み25 μ m)上にバーコーター(「松尾産業製」#24番)で塗布し、80℃で溶媒を乾燥して転写層の厚さが10 μ mの転写シートを得た。得られた転写シートを2枚用いて、その樹脂面を金属基板両面の第1樹脂層に重ね合わせ、温度200℃、10分、圧力3.5 \times 10⁶Pa(36kgf/cm²)にて熱プレスした後、転写基材をはがして第2の樹脂層を形成した。

【0060】得られた複合板1の厚みは0.72mmであった。

【0061】<実施例2>実施例1と同じ方法で得た、フッ素樹脂シート(第1の樹脂層 厚み200 μ m)と、転写シート(転写層厚み10 μ m)2枚を、転写基材(PETシート)が外側に成るように、転写シート/フッ素樹脂シート/転写シートの順に載置し、温度200℃、10分、圧力3.5 \times 10⁶Pa(36kgf/cm²)にて熱プレスした後、転写基材2枚をはがして、第1の樹脂層の両側に第2及び第3の樹脂層を形成した。得られた導電性シートの総厚みは220 μ mであった。

【0062】上記方法で得られた導電性シート2枚と、実施例1と同様の表面処理が施されたSUS304板(厚み0.3mm)を、導電性シート/SUS304板/導電性シートの順に載置し、温度200℃、10分、圧力3.5 \times 10⁶Pa(36kgf/cm²)にて熱プ

レスして、積層一体化し、金属基板の両面に外側から第2の樹脂層/第1の樹脂層/第3の樹脂層を形成した。

【0063】得られた複合板2の厚みは0.74mmであった。

【0064】<プレス加工の結果>上記実施例1、2で得られた複合板1及び複合板2を、プレス後のガス流路の形状は波形で、ガス流路のピッチが3mm、波形の凸部と凹部の差は0.5mmに成形できる金型を使用して、プレス成型機「(株)アマダ」製 トルクバックプレス プレス速度45spm)にて室温でプレス成形した。

【0065】得られた燃料電池用セパレータは、タングステンカーバードまたはカーボンナノチューブを含むフッ素樹脂層と金属板との接着性が良好で剥離等がなかった。

【0066】<接触抵抗の測定>実施例1、2で得られた複合板1、2の接触抵抗を測定した。接触抵抗の評価は以下に行った。

1. 測定装置

抵抗計:YMR-3型((株)山崎精機研究所社製)

負荷装置:YSR-8型((株)山崎精機研究所社製)

電極:真鍮製平板2枚(面積1平方インチ、鏡面仕上げ)

2. 測定条件

方法:4端子法

印加電流:10mA(交流、287Hz)

開放端子電圧:20mVピーク以下

接触荷重:0.90 \times 10⁵Pa

1.8 \times 10⁵Pa

4.5 \times 10⁵Pa

9.0 \times 10⁵Pa

18 \times 10⁵Pa

カーボンペーパー:東レ社製TGP-H-090(厚み0.28mm)

3. 測定方法

図4に示した測定装置により、セパレータ23を、カーボンペーパー22を介して両側から真鍮製電極21で挟み、所定の荷重を加えながら、4端子法にて所定の電流印加時の電圧を測定して接触抵抗を求めた。

【0067】測定結果を図5のグラフ中の複合板1、2で示した。比較のために東海カーボン社製樹脂含浸黒鉛G347Bも評価した。

【0068】図5のグラフに示す通り、複合板1、2は、接触抵抗値が格段に小さく、樹脂含浸黒鉛とほぼ同等の接触抵抗値であった。

【0069】

【発明の効果】本発明によれば、集電性能と成形性、強度および耐食性の両方を満足する燃料電池、特に固体高分子電解質型燃料電池用のセパレータを提供することができる。従って、長時間の運転が可能な燃料電池用とし

ての利用性が大きい。

【図面の簡単な説明】

【図1】燃料電池のセパレータ付近を模式的に示す図である。

【図2】本発明のセパレータの層構造の1例を示す図である。

【図3】本発明のセパレータの層構造の1例を示す図である。

【図4】接触抵抗の測定方法を示す図である。

【図5】接触荷重と接触抵抗値の関係を示すグラフである。

【符号の説明】

1 a、1 b 単電池

2 a、2 b 固体高分子電解質膜

3 a、3 b 電極

4 a、4 b ガス流路

10 セパレータ

11 金属基板

12 樹脂導電層

13 第1の樹脂層

14 第2の樹脂層

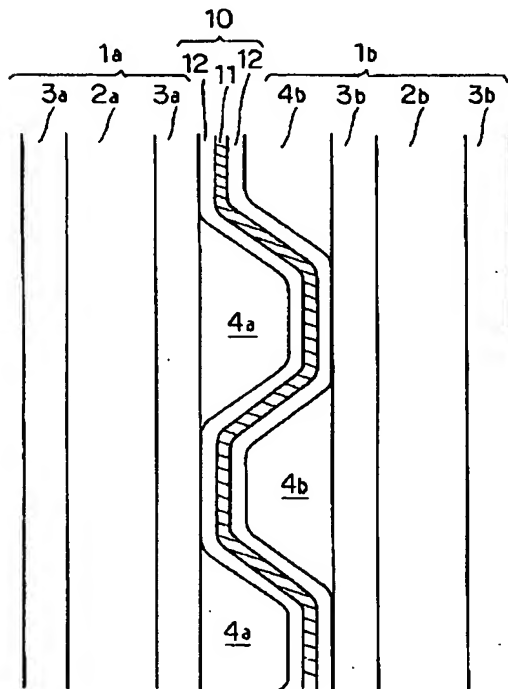
15 第3の樹脂層

21 真鍮製電極

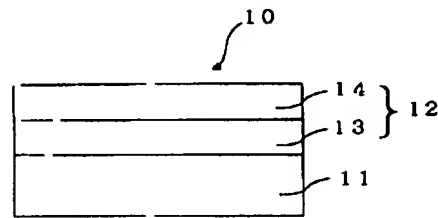
22 カーボンペーパー

23 セパレータ

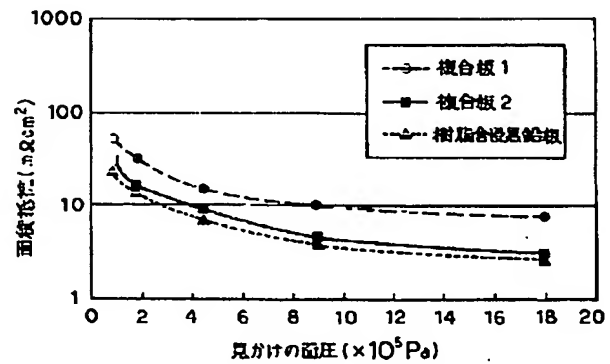
【図1】



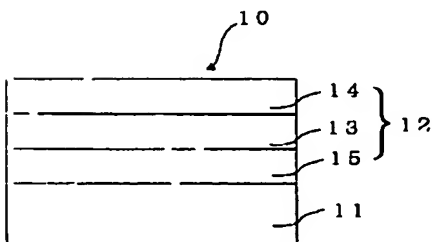
【図2】



【図5】



【図3】



【図4】

